

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-216854

(43)Date of publication of application : 02.08.2002

(51)Int.Cl.

H01M 10/40

H01M 2/22

H01M 10/04

(21)Application number : 2001-014731

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 23.01.2001

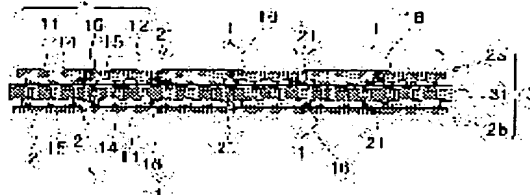
(72)Inventor : NISHIDE YUKIMASA

## (54) MANUFACTURING METHOD OF BIPOLAR SECONDARY CELL, AND BIPOLAR SECONDARY CELL

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an efficient manufacturing method of a bipolar secondary cell with high capacity, and to provide a bipolar secondary cell manufactured by the above method.

SOLUTION: The first subassembly 1, having a positive electrode activator layer 14, a negative electrode activator layer 15, and an insulation part 16 at least on one surface of a complex current collector foil 10, formed by connecting a positive electrode current collector foil 11 and a negative electrode current collector foil 12, is manufactured. The sheet-shaped second sub assembly 2 is formed by jointing a plurality of the first subassemblies 1 interposing insulation members 21 between, so that the positive electrode current collector foil 11 and the negative electrode current collector foil 12 stand alternately in a line. The third subassembly preparatory body 3' is formed by making two second subassemblies 2a, 2b face each other interposing a porous separator 31 made of thermoplastic resin, and the third subassembly is formed by heating the preparatory body and making the separator 31 fuse and tightly adhere to the insulation parts 16 and the insulation members 21 of the second subassembly 2a, 2b, so as to prevent leakage of liquid. The bipolar secondary cell is manufactured by using the third subassembly.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 20.01.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3608047

[Date of registration] 22.10.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-216854

(P2002-216854A)

(43) 公開日 平成14年8月2日 (2002.8.2)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームコード* (参考)
H 0 1 M 10/40		H 0 1 M 10/40	Z 5 H 0 2 2
2/22		2/22	E 5 H 0 2 8
10/04		10/04	Z 5 H 0 2 9

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願2001-14731 (P2001-14731)

(22) 出願日 平成13年1月23日 (2001.1.23)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 西出 行正

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100094190

弁理士 小島 清路

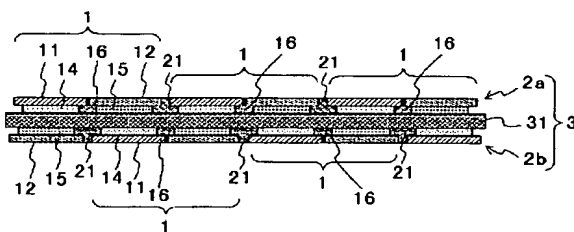
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイポーラ型二次電池の製造方法およびバイポーラ型二次電池

(57) 【要約】

【課題】 高容量のバイポーラ型二次電池を効率よく製造する方法、およびこの方法により製造されたバイポーラ型二次電池を提供する。

【解決手段】 正極集電箔11と負極集電箔12とを接続してなる複合集電箔10の少なくとも片面に、正極活性物質層14、負極活性物質層15および絶縁部16を備えた第一サブアッシー1を作製する。複数枚の第一サブアッシー1を、正極集電箔11と負極集電箔12とが交互に並ぶように絶縁性部材21により連結してシート状の第二サブアッシー2とする。二枚の第二サブアッシー2 a、2 bを、熱可塑性樹脂製の多孔質セパレータ31を挟んで対向配置して第三サブアッシー予備体3'とし、これを加熱して第二サブアッシー2 a、2 bのもつ絶縁部16と絶縁性部材21との間でセパレータ31を液密に熱溶着させて第三サブアッシーとする。この第三サブアッシーを用いてバイポーラ型二次電池を作製する。



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 正極集電箔と負極集電箔とを接続してなる複合集電箔の少なくとも片面に、上記正極集電箔上に形成された正極活物質層と、上記負極集電箔上に形成された負極活物質層と、上記正極活物質層と上記負極活物質層との間に形成された絶縁部と、が設けられた第一サブアッシーを作製し、

複数枚の上記第一サブアッシーを、絶縁性部材を介して、上記片面の向きが揃いかつ一端から他端に向けて上記正極集電箔と上記負極集電箔とが交互に並ぶように連結してシート状の第二サブアッシーとし、

二枚の上記第二サブアッシーを、一方の上記第二サブアッシーのもつ上記正極活物質層と他方の上記第二サブアッシーのもつ上記負極活物質層とが向かい合うように、熱可塑性樹脂からなる多孔質のセパレータを挟んで対向配置して第三サブアッシー予備体とし、

上記第三サブアッシー予備体を加熱することにより、一方の上記第二サブアッシーのもつ上記絶縁性部材と他方の上記第二サブアッシーのもつ上記絶縁部との間で上記セパレータを液密に熱溶着させて第三サブアッシーとすることを特徴とするバイポーラ型二次電池の製造方法。

【請求項2】 絶縁シートを介して上記第三サブアッシーを巻回する請求項1記載のバイポーラ型二次電池の製造方法。

【請求項3】 上記絶縁部および上記絶縁性部材は熱可塑性樹脂からなる請求項1または2記載のバイポーラ型二次電池の製造方法。

【請求項4】 請求項1から3のいずれか一項記載の方法により製造され、上記第三サブアッシーには一端から他端にかけて互いに液密に封止された複数のセルが隣接して形成されており、かつ該複数のセルは上記第三サブアッシーの一端から他端に向けて順次電氣的に直列に接続されていることを特徴とするバイポーラ型二次電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、バイポーラ型二次電池の製造方法およびこの方法により製造されたバイポーラ型二次電池に関する。

【0002】

【従来の技術】高電圧を得るために、リチウム二次電池等を複数直列に接続したものを一個の電池としたバイポーラ型二次電池が知られている。例えば特開2000-30746号公報には、正極と負極との間にセパレータを挟んだ電池構成体が複数個同心円状に巻回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって順次電氣的に直列に接続されたバイポーラ型リチウムイオン二次電池が開示されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】図7は、上記公報に記載されたバイポーラ型リチウムイオン二次電池の一例を

2

示す断面図である。符号126a～126dは電池構成体を示し、それぞれ正極活物質層と負極活物質層とがセパレータ（いずれも図示せず）を介して対向配置された構成を有する。各電池構成体126は、ポリプロピレンからなる袋状の絶縁容器128によって互いに隔てられている。このバイポーラ型リチウムイオン二次電池は、内側の電池構成体126（例えば126a）の巻回体を絶縁容器128に収め、その上から外側の電池構成体126（例えば126b）を巻回して別の絶縁容器128に収める、という手順を繰り返した後、リード線130により電池構成体126a～126dを電氣的に直列に接続して作製される。

【0004】また図8は、上記公報に記載されたバイポーラ型リチウムイオン二次電池の他の例において用いられる電池構成体を示す断面図である。各電池構成体126は、正極集電箔110の片面に形成された正極活物質112と負極集電箔114の片面に形成された負極活物質116とをセパレータ118を介して対向配置し、これを絶縁フィルム136で覆ってなる。正極集電箔110および負極集電箔114の一端は絶縁フィルム136の外まで延びて接続部132を形成しており、隣接する電池構成体126はこの接続部132により電氣的に直列に接続されている。複数個の電池構成体126をこのように接続した後、この接続体を端から巻回してバイポーラ型リチウムイオン二次電池を作製する。

【0005】しかし、上記のような構成を有するバイポーラ型リチウムイオン二次電池は製造工程が複雑となる傾向にある。特に図1に示す電池では、各電池構成体126を巻回して絶縁容器128に収める工程を繰り返すので、高い製造効率を得ることは困難である。また、図2に示す電池では電池構成体126と接続部132との厚みの差が大きいため、得られた巻回体の内部に隙間が生じて単位体積当たりの電池容量が低下しやすい。

【0006】本発明の目的は、単位体積当たりの電池容量の高いバイポーラ型二次電池を効率よく製造することのできるバイポーラ型二次電池の製造方法、およびこの方法により製造されたバイポーラ型二次電池を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、請求項1記載のバイポーラ型二次電池は、正極集電箔と負極集電箔とを接続してなる複合集電箔の少なくとも片面に、上記正極集電箔上に形成された正極活物質層と、上記負極集電箔上に形成された負極活物質層と、上記正極活物質層と上記負極活物質層との間に形成された絶縁部と、が設けられた第一サブアッシーを作製し、複数枚の上記第一サブアッシーを、絶縁性部材を介して、上記片面の向きが揃いかつ一端から他端に向けて上記正極集電箔と上記負極集電箔とが交互に並ぶように連結してシート状の第二サブアッシーとし、二枚の上記第二サ

10

20

30

40

50

ブアッシーを、一方の上記第二サブアッシーのもつ上記正極活物質層と他方の上記第二サブアッシーのもつ上記負極活物質層とが向かい合うように、熱可塑性樹脂からなる多孔質のセパレータを挟んで対向配置して第三サブアッシー予備体とし、上記第三サブアッシー予備体を加熱することにより、一方の上記第二サブアッシーのもつ上記絶縁性部材と他方の上記第二サブアッシーのもつ上記絶縁部との間で上記セパレータを液密に熱溶着させて第三サブアッシーとすることを特徴とする。

【0008】請求項2記載のバイポーラ型二次電池の製造方法は、請求項1記載の方法において、絶縁シートを介して上記第三サブアッシーを巻回することを特徴とする。

【0009】請求項3記載のバイポーラ型二次電池の製造方法は、請求項1または2記載の方法において、上記絶縁部および上記絶縁性部材は熱可塑性樹脂からなることを特徴とする。

【0010】そして、請求項4記載のバイポーラ型二次電池は、請求項1から3のいずれか一項記載の方法により製造され、上記第三サブアッシーには一端から他端にかけて互いに液密に封止された複数のセルが隣接して形成されており、かつ該複数のセルは上記第三サブアッシーの一端から他端に向けて順次電氣的に直列に接続されていることを特徴とする。

【0011】

【発明の実施の形態】以下、図面を用いて本発明の実施態様を説明する。本発明の製造方法に用いられる第一サブアッシー1の構成を図1に示す。正極集電箔11の片面には正極活物質層14が形成され、負極集電箔12の片面には負極活物質層15が形成されている。この正極集電箔11の端部と負極集電箔12の端部とを、両活物質層が同じ側を向くように例えば抵抗溶接により接続して、正極集電箔11と負極集電箔12とが接続部13にて接続された複合集電箔10を作製する。この複合集電箔10の片面において、正極活物質層14と負極活物質層15との間には所定の隙間が設けられており、この隙間に熱可塑性樹脂を例えば静電塗装することにより絶縁部16を形成する。なお、予め正極集電箔11と負極集電箔12とを接続した後に、この複合集電箔10上に正極活物質層14、負極活物質層15および絶縁部16を任意の順序で形成してもよい。

【0012】次いで、図2に示すように、複数枚の第一サブアッシー1を、正極活物質層14および負極活物質層15が形成された面が同じ側を向き、かつ正極集電箔11と負極集電箔12とが交互に並ぶように連結して、シート状の第二サブアッシー2を作製する。この連結は、第一サブアッシー1bの正極集電箔11には第一サブアッシー1a負極集電箔12が、第一サブアッシー1bの負極集電箔12には第一サブアッシー1cの正極集電箔11が隣接するようにして複数枚の第一サブアッシー

ー1を並設配置し、これらの間に熱可塑性樹脂からなるテープ（絶縁性部材）21を配して、両側の第一サブアッシー1とテープ21とを加熱溶着させる等の方法により行うことができる。このとき、隣接する第一サブアッシー1間の短絡を防止するため、両第一サブアッシー1の間がテープ21を構成する熱可塑性樹脂によって隔てられるように熱溶着させることが好ましい。また、粘着機能を有するテープ21を用いて、このテープ21を並設配置された第一サブアッシー1の片面および他面からそれぞれ貼り付けることにより第二サブアッシー2を作製してもよい。あるいは、隣接する第一サブアッシー1をホットメルト型接着剤等により連結してもよい。

【0013】その後、図3に示すように、二枚の第二サブアッシー2a、2bを、正極活物質層14と負極活物質層15とがそれぞれ向かい合うように、熱可塑性樹脂からなる多孔質のセパレータ31を挟んで対向配置して第三サブアッシー予備体3'を構成する。このとき、絶縁部16と絶縁性部材21とがほぼ対向するように第二サブアッシー2aと2bとの位置合わせを行うことが好ましい。なお、このセパレータ31は、あらかじめ電解液を含浸させた後に第二サブアッシー2a、2bの間に配置してもよく、また後述する熱溶着を行った後にセパレータ31に電解液を含浸させてもよい。

【0014】そして、絶縁部16と絶縁性部材21とが対向する個所に、第三サブアッシー予備体3'の両側から熱を加え、この部分のセパレータ31を溶かして多孔質体の孔を塞ぐとともに、このセパレータ31と絶縁部16および絶縁性部材21とを熱溶着させて第三サブアッシー3を得る。この第三サブアッシー3内には、上記熱溶着により形成された熱溶着部32によって、図4における左右方向（第三サブアッシー3の長手方向）が液密に区画された複数のセルC（電池構成体）が形成されている。各セルCの正極集電箔11は一方の側に隣接するセルCの負極集電箔12と接続された複合集電箔10であり、またこのセルCの負極集電箔12は他方の側に隣接するセルCの正極集電箔11と接続された複合集電箔10である。したがって、これらのセルCは図4の左端から右端にかけて順次電氣的に直列に接続されている。

【0015】さらに、電解液の移動によるセルC間の短絡を確実に防止するため、第三サブアッシー3を構成する各セルCを液密に封止することが好ましい。この封止方法としては、図5および図6に示すように、第三サブアッシー3の周囲を熱可塑性樹脂等からなる絶縁シート41で覆う方法等が用いられる。あるいは、図6における左右方向（第三サブアッシー3の幅方向）の両端のみを絶縁シート41で覆ってもよい。

【0016】この第三サブアッシーを、例えば任意の形態に変形させて電池容器に収めることにより、バイポーラ型二次電池を製造することができる。第三サブアッシー

一を電池容器に収める際の形態としては巻回、折り畳み、積層等が挙げられ、巻回することが好ましい。この巻回等の変形は、集電箔の接触や電解液の移動等によるセル間の短絡を防止するために、絶縁シート等の絶縁手段を介して行うことが好ましい。なお、この絶縁シートは各セルを液密に封止する役割をも担ってもよい。また、複数枚の第三サブアッシーを直列または並列に接続したものを任意の形態で電池容器に収めることにより、一つのバイポーラ型二次電池を製造することもできる。上記第三サブアッシーは、全体としてほぼ平坦なシート状であるので、巻回時等における取り扱い性に優れるとともに、隙間の少ない巻回体等を作製しやすいため電池容器内の空間を有効に利用することができる。また、各セルは隣接するセルと複合集電箔を共有することによって直列接続されているので、リード線などを介して直列接続する構成に比べて電池の内部抵抗を低減することができる。

【0017】なお、上記実施態様では絶縁部16、絶縁性部材21およびセパレータ31としていずれも熱可塑性樹脂を用いたが、セパレータ31と絶縁部16および絶縁性部材21とを液密に熱溶着させることができれば、絶縁部16および絶縁性部材21として熱可塑性樹脂以外の材料（例えば熱硬化性樹脂、紫外線硬化性樹脂等からなる絶縁性材料）を使用してもよい。ただし、セパレータ31との熱溶着性や、得られた第三サブアッシー3に巻回または折り畳みなどの変形を加える場合における追従性（可撓性）の点から、絶縁部16および絶縁性部材21としては熱可塑性樹脂を用いることが好ましい。この熱可塑性樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、セルロース系材料等から選択される一種または二種以上を使用することができる。また、正極活物質層および／または負極活物質層は、通常は上記実施態様のように集電箔の片面にのみ形成されることが好ましいが、他のセル等との短絡を防ぐことのできる構成であれば、集電箔の両面に活物質層を設けてもよい。

【0018】本発明の製造方法は、バイポーラ型リチウム二次電池の製造方法等として好適である。このバイポーラ型リチウム二次電池を構成する材料としては、従来のリチウム二次電池と同様のもの等を用いればよい。例えば、正極集電箔としてはアルミニウム箔、ニッケル箔、銅箔等の金属箔を用いることができ、このうちアルミニウム箔を用いることが好ましい。正極活物質層としては、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ 等のリチウムマンガン酸化物、 $\text{LiNiO}_2$ 等のリチウムニッケル酸化物、 $\text{LiCoO}_2$ 等のリチウムコバルト酸化物、 $\text{LiFeO}_2$ 等のリチウム鉄酸化物等からなる正極活物質と、カーボンブラック、黒鉛、ピッチコークス等からなる導電化材と、ポリフッ化ビニリデン（PVDF）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等からなる結着剤と、からなるもの等を用いることができる。

【0019】また、負極集電箔としてはアルミニウム箔、ニッケル箔、銅箔等の金属箔を用いることができ、このうち銅箔を用いることが好ましい。負極活物質層としては、アモルファスカーボン、グラファイト等の炭素材料あるいはSi、Sn、In等の金属とLiとの合金または酸化物等からなる負極活物質、およびPVDF等の結着剤を含有するもの等を用いることができる。あるいは、負極として金属リチウムを用いてもよい。

【0020】電解液としては、従来のリチウム二次電池に用いられる各種非プロトン性溶媒から選択される一種または二種以上、例えばエチレンカーボネート（EC）、プロピレンカーボネート（PC）、γ-ブチロラクトン、1,2-ジメチルエタン、テトラヒドロフラン、1,3-ジオキサン、酢酸メチル、ジエチルカーボネート（DEC）、エチルメチルカーボネート（EMC）、ジメチルカーボネート（DMC）等を用いることができる。また電解質としては、従来のリチウムイオン二次電池に用いられる各種リチウム塩、例えば $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ 、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{LiSbF}_6$ 、 $\text{LiC}_4\text{F}_9\text{SO}_3$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{SiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 等を用いることができ、これらのうち $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ が好ましい。電解液中における電解質濃度は通常0.05～10mol/L程度であり、好ましくは0.1～5mol/L程度である。

【0021】

【発明の効果】本発明の製造方法では、二枚のシート状の第二サブアッシーをセパレータを介して対向配置させた後、このセパレータを熱溶着させることにより各セルを区画して第三サブアッシーを作製し、この第三サブアッシーを例えば電池容器に収めてバイポーラ型二次電池を構成する。この第三サブアッシーは、全体としてほぼ平坦なシート状であるので、電池容器に収める際等における取り扱い性に優れる。また、電池容器への充填性を高くしやすいため、高容量の（単位体積当たりの電池容量の高い）電池を得ることができる。さらに、各セルは隣接するセルと複合集電箔を共有することによって直列に接続されているので、リード線などを介して接続する構成に比べて電池の内部抵抗を低減することができる。本発明のバイポーラ型二次電池は、本発明の製造方法により製造されているので、高電圧かつ高容量の電池とすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の製造方法における第一サブアッシーの一例を示す断面図である。

【図2】本発明の製造方法における第二サブアッシーの一例を示す断面図である。

【図3】本発明の製造方法における第三サブアッシー予備体の一例を示す断面図である。

【図4】本発明の製造方法における第三サブアッシーの

(5)

特開2002-216854

7

8

一例を示す断面図である。

【図5】第三サブアッシーを構成するセルを液密に封止した一例を示す断面図である。

【図6】図5のVI-VI線断面図である。

【図7】従来のバイポーラ型リチウムイオン二次電池の一例を示す断面図である。

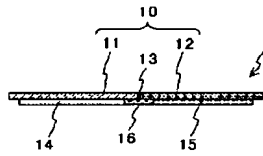
【図8】従来のバイポーラ型リチウムイオン二次電池の他の例において用いられる電池構成体を示す断面図である。

\*【符号の説明】

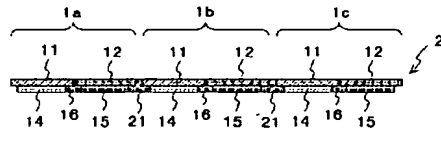
1：第一サブアッシー、10：複合集電箔、11：正極集電箔、12：負極集電箔、13：接続部、14：正極活物質層、15：負極活物質層、16：絶縁部、2：第二サブアッシー、21：テープ（絶縁性部材）、3'：第三サブアッシー予備体、3：第三サブアッシー、31：セパレータ、32：熱溶着部、41：絶縁シート、C：セル。

\*

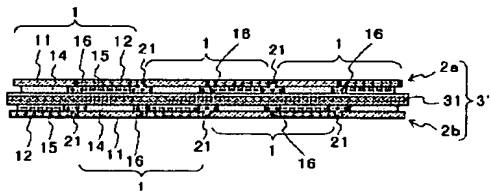
【図1】



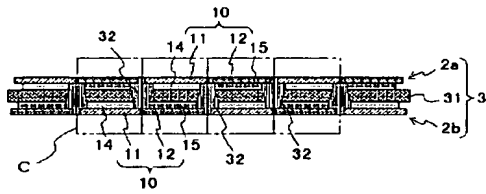
【図2】



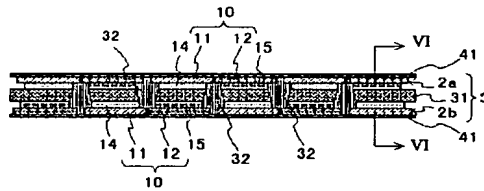
【図3】



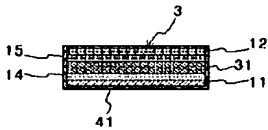
【図4】



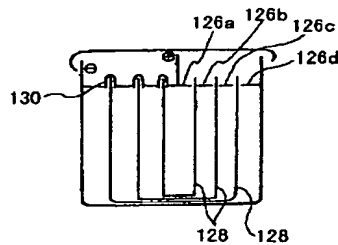
【図5】



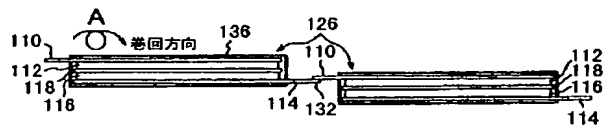
【図6】



【図7】



【図8】



(6)

特開2002-216854

フロントページの続き

F ターム(参考) SH022 AA09 AA18 AA20 BB06 BB11  
CC12 CC25  
SH028 AA05 BB05 BB07 CC08 CC12  
CC19 CC20  
SH029 AJ03 AJ14 AK03 AL06 AL07  
AL08 AM03 AM04 AM07 BJ04  
BJ17 CJ02 CJ05 CJ07 DJ04  
DJ07